

Disclaimer:

This English translation is produced by machine translation and may contain errors. The JPO, the NCIP, and those who drafted this document in the original language are not responsible for the result of the translation.

Notes:

1. Untranslatable words are replaced with asterisks (****).
2. Texts in the figures are not translated and shown as it is.

Translated: 22:14:32 JST 05/24/2005

Dictionary: Last updated 10/12/2004 / Priority:

FULL CONTENTS

[Claim(s)]

[Claim 1] In the electro-luminescence equipment which has an electronic pouring cathode layer, an electro-luminescence luminous layer, and a hole pouring anode layer at least The electronic pouring cathode layer formed in contact with the metal thin film formed on the substrate, The electroluminescence luminous layer and hole pouring anode layer which were formed on this electronic pouring cathode layer, Electro-luminescence equipment which has the protective coat of the translucency which closes the outside surface of the layered product of the above-mentioned electronic pouring cathode layer, the above-mentioned electro-luminescence luminous layer, and the above-mentioned hole pouring anode layer.

[Claim 2] The above-mentioned substrate is electro-luminescence equipment according to claim 1 characterized by being the metallic base which has an insulating layer on the surface, the substrate of a flexible organic material, or a glass substrate.

[Claim 3] The above-mentioned metal thin film is electro-luminescence equipment according to claim 1 or 2 characterized by being the conductive metal made to reflect light.

[Claim 4] The material of the above-mentioned electronic pouring cathode layer is electro-luminescence equipment according to claim 1, 2, or 3 characterized by being one material chosen from the group which consist of calcium, a lithium, and magnesium.

[Claim 5] The thickness of the material of the above-mentioned electronic pouring cathode layer is electro-luminescence equipment according to claim 4 characterized by being 100A or 5000A.

[Claim 6] The material of the above-mentioned luminous layer is electro-luminescence equipment according to claim 1, 2, 3, or 4 characterized by being tris (8-hydroxy KINORINO) aluminum.

[Claim 7] The thickness of the material of the above-mentioned luminous layer is electro-luminescence equipment according to claim 6 characterized by being 100A or 1000A.

[Claim 8] Between the above-mentioned electro-luminescence luminous layer and the above-mentioned hole pouring anode layer Claims 1, 2, 3 and 4 characterized by preparing the hole transporting bed formed by the - biphenyl 4 and N and N'-diphenyl N, N'-screw (3-methyl phenyl)-1, and 1'4'-diamine, or electro-luminescence equipment given in six.

[Claim 9] The thickness of the above-mentioned hole transporting bed is electro-luminescence equipment according to claim 8 characterized by being 100A or 1000A.

[Claim 10] The material of the above-mentioned hole pouring anode layer is electro-luminescence equipment Claims 1, 2, 3 and 4 characterized by being poly aniline, 6, or given in eight.

[Detailed Description of the Invention]**[0001]**

[Industrial Application] This invention relates to the organic thin film electro-luminescence (EL) equipment used as a flat panel display.

[0002]

[Description of the Prior Art] since [reports-of-research /, such as C.W.Tang of Eastman Kodak announced in 1987,] (C. -- W.Tang and S.A. -- [Vanslyke, "Organic Electroluminescent Diodes" and]) Research and development of Appl.Phys.Lett., Vol.51, 12, pp.913-915, Sept.1987, and an organic thin film EL device are performed actively. The structure of those organic thin film EL devices is the "latest development of organic thin film with photoelectrical interconversion function" ****. They are ****, ADACHI, Chihaya, *****, applied physics, the 59th volume, No. 12, and a page [1580 - 1592nd] paper. It is divided roughly into three kinds, a singlehetero-A mold (SH-A), a single hetero-B mold (SH-B), and a double hetero mold (DH), and has structure as

THIS PAGE BLANK (USPTO)

shown in drawing 1 , drawing 2 , and drawing 3 .

[0003] In the SH-A mold shown in drawing 1 , on the glass substrate 201 Laminated constitution of the cathode 205 which serves as the Indium Tin Oxide (ITO) layer 202 of transparency, the hole transporting bed 203, the electronic transporting bed 204 used as a luminous layer, and an electron injection layer mainly made from a MgAg vapor codeposition alloy as an anode used as a hole pouring layer is carried out.

[0004] In the SH-B mold shown in drawing 2 , laminated constitution of the cathode which serves as the ITO layer 302, the hole transporting bed 302 used as a luminous layer, the electronic transporting bed 304, and an electron injection layer mainly made from a MgAg vapor codeposition alloy as an anode used as a hole pouring layer is carried out on the glass substrate 301.

[0005] In DH mold shown in drawing 3 , on the glass substrate 401 Laminated constitution of the cathode 406 which serves as the ITO layer 402, the hole transporting bed 403, the luminous layer 404 made from the department of ** which has both sexes transportability, the electronic transporting bed 405, and an electron injection layer mainly made from a MgAg vapor codeposition alloy as an anode used as a hole pouring layer is carried out one by one.

[0006] When one of the methods of protecting the structure shown in drawing 1 or 3 is explained, after carrying out passivation by the vacuum evaporatio layer of GeO (germanium dioxide) or LiF (lithium fluoride), the metho of attaching glass further using ultraviolet-rays adhesives is. Electrical installation to a cathode layer and an anode layer can be performed using anisotropy conductive rubber or electroconductive glue, or can carry out direct contact of a connector or the clip.

[0007] Since it is the electron according [the mechanism of luminescence] all to electric-field impression in the three above-mentioned kinds of structures, double injection, and recombination of a hole, this kind of device is called the carrier pouring mold. In order to carry out EL luminescence efficient, it is known that material with high carrier pouring efficiency is advantageous. That is, in order to make an electron pour in efficiently to an electronic transporting bed as a cathode layer from which a high material of a work function is good, and serves as an electron injection layer on the other hand as an anode layer used as a hole pouring layer in order to make hole transporting bed HEHORU pour in efficiently, it is supposed that a low material of a work function is suitable.

[0008] Since **** will not have emitting light outside if either an anode layer or the cathode layer of the layer for EL devices is not transparent at least, ITO which has translucency is adopted widely. The work function of ITO has the literature report that it is 4.1eV (G. Gustafsson, Y.Cao, G.M.Treacy, F.Klavetter, N.Colaneri, and A.J.Heeger, "Flexible). Light-Emitting Diodes Made from Soluble Conducting Polymers", Nature, Vol.357, pp.477-479, June, 1992, Since the work function is high, it is mainly used for an anode layer. On the other hand, what has a value a cathode layer needs to be material with a work function lower than ITO, and low if possible is desired.

[0009]

[Problem to be solved by the invention] It is as follows when the troubles of the organic thin film EL device of a mold are enumerated conventionally.

[0010] (1) By the organic thin film EL device of the mold, it has conventionally the electronic pouring cathode layer 205, 305, and structure that has 406 in the outermost part of EL device. As mentioned above, the electronic pouring cathode layer 205, 305, and 406 are made from a low material of a work function, and the material which in other words oxidizes easily in activity chemically, in order to raise electronic pouring efficiency. Therefore, considering the functional stability under the operating environment of the EL device itself, it is not desirable to arrange this at the outermost part.

[0011] In order to improve functional stability, when forming the electronic pouring cathode layer 205, 305, and 406, in the organic thin film EL device of a mold, it is conventionally common to add and carry out vapor codeposition of the metal stabilized chemically [Ag etc.] to the material of a low work function. In this case, when two or more deposition sources are needed, control of the amount of vapor codeposition cannot but be needed, and a membrane formation process cannot but become complicated.

[0012] (2) Since an organic thin film EL device is luminescence of a carrier pouring mold, the electrical energy which is not changed into EL luminescence is changed into the Joule's heat. For this Joule's heat, the temperature of a device rises, and if the glass transition point of the organic thin film material which constitutes a device is exceeded, luminescence will deteriorate quickly. For the reinforcement of a device, although it is a fundamental solution to reduce generating of the Joule's heat, it is actually impossible to make EL luminous efficiency 100%, i.e., to make generating of the Joule's heat into zero. Therefore, it is important as a secondary cure to make the generated Joule's heat emit to the exterior efficiently. With the structure of the organic thin film EL device of a mold, heat conduction from the source of generation of heat to the glass substrate 201, 301, or 401 and heat transfer from the glass substrate 201, 301, or 401 to the inside of the air of an operating environment are mainly conventionally thought as a heat dissipation path. However, the thermal conductivity of the glass in ordinary temperature is about 1 W/m/K, and is remarkably inferior compared with a metallic material.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

This is a value with double or more low figures as compared with aluminum ($k=237$ W/m/K) which is a typical metallic material, Cu ($k=402$ W/m/K), and Ag ($k=427$ W/m/K). This shows that degradation of EL luminescence is improvable, if a substrate which has thermal conductivity equivalent to a metal temporarily can be used. However in the organic thin film EL device of a mold, since the structure upper substrate must be translucency, it is conventionally impossible to use material of high temperature conductivity like a metal.

[0013] (3) In order to emit light outside as a material of a substrate 201, 301, and 401, it is limited to polymer films, such as transparent glass or transparent polyethylene terephthalate.

[0014] (4) In EL device with a big luminescent surface, it is desired for the field interior division cloth of EL luminescence intensity to be uniform. The conditions for making luminescence intensity distribution within a field into homogeneity are being sufficient thickness value and forming a layer to homogeneity. Generally the vacuum deposition method is conventionally adopted as a method of forming the electron injection layer 205, 305, and 405 by the organic thin film EL device of the mold. However, when it is going to adhere a thick layer in a vacuum deposition method, process time amount becomes long. Moreover, it is difficult to adhere to uniform thickness to a big luminescent surface. Although the wet forming-membranes methods, such as plating, are advantageous in respect of both a raise in a thick film, and high equalization, they are not conventionally [in which the organic thin film exists] employable as directly under by EL device of a mold.

[0015]

[Means for solving problem] This invention is set to this equipment, concerning the electro-luminescence equipment which has an electronic pouring cathode layer, an electro-luminescence luminous layer, and a hole pouring anode layer at least. An electronic pouring cathode layer is formed in contact with the metal thin film formed on the substrate. An electroluminescence luminous layer and a hole pouring anode layer are formed on this electronic pouring cathode layer, and the outside surface of the layered product of the above-mentioned electronic pouring cathode layer, the above-mentioned electro-luminescence luminous layer, and the above-mentioned hole pouring anode layer is closed with the protective coat of translucency.

[0016] The above-mentioned substrate is the metallic base which has an insulating layer on the surface, the substrate of a flexible organic material, or a glass substrate.

[0017] The above-mentioned metal thin film is a conductive metal made to reflect light.

[0018] The material of the above-mentioned electronic pouring cathode layer is one material chosen from the group which consists of calcium, a lithium, and magnesium.

[0019] The thickness of the material of the above-mentioned electronic pouring cathode layer is 100Å or 5000Å. The material of the above-mentioned luminous layer is tris (8-hydroxy KINORINO) aluminum.

[0020] The thickness of the material of the above-mentioned luminous layer is 100Å or 1000Å.

[0021] A hole transporting bed is prepared between the above-mentioned electro-luminescence luminous layer and the above-mentioned hole pouring anode layer, and the material of this hole transporting bed is the π -biphenyl 4 and N and N'-diphenyl N, N'-screw (3-methyl phenyl)-1, and 1'4'-diamine.

[0022] The thickness of the above-mentioned hole transporting bed is 100Å or 1000Å.

[0023] The material of the above-mentioned hole pouring anode layer is poly aniline.

[0024]

[Working example] Drawing 4 radiates the Joule's heat efficiently, cancels degradation of EL luminescence, and, moreover, the electron injection layer which is easy to be influenced by an external atmosphere. The inside of a device, It arranges to the most distant interior from an external atmosphere, and the example of (Electroluminescence EL) luminescence equipment 100 of this invention which continues and makes a long period of time stabilize the function of an electron injection layer is shown.

[0025] In EL luminescence equipment 100 of drawing 4, a substrate 101 is formed with material with the high thermal conductivity of non-translucency. And the surface of this high temperature conductivity metallic base is covered by electric insulating layer 101' like an oxide film about 1000Å thick. With drawing 1 or the conventional EL luminescence equipment of drawing 3, [the light from EL luminous layer] Pass the glass substrate 201, 301, or 401, and it is emitted outside and [therefore, these substrates] To having had to be translucency, [drawing 4 and EL luminescence equipment of this invention of drawing 5] Light is not emitted outside through a substrate 101 or 501. It is emitted outside through the protective coat 108 of translucency, or 508, and since the metal thin film 102 or the material of 502, and thickness can be chosen so that the Joule's heat may be made to emit outside efficiently, the material of substrates 101 and 501 can be freely chosen as compared with conventional equipment. Therefore, in this invention [a substrate 101 or 501] A thick metallic base or a thick thin flexible metallic foil, a ceramic substrate excellent in heat dissipation nature, The substrate of the arbitration of a flexible polymer film substrate like flexible polyimide, the glass substrates currently used conventionally, etc. can be freely chosen according to the use of this EL luminescence equipment, therefore the activity field of EL luminescence equipment can be extended remarkably. When heat dissipation nature uses a low substrate as compared with a

THIS PAGE BLANK (USPTO.

metal, a radiating effect can be heightened by increasing the metal thin film 102 or the cross section of 502. Thus since a flexible substrate can also be used according to this invention, curved-surface-like EL luminescence equipment is realizable. However, to form so that two or more EL luminescence equipment may be independently operated selectively on one metallic base, an insulating layer is formed on a metallic base and it is required to form the metal thin film 102 or 502 on this insulating layer. The insulating layer is unnecessary, when forming single EL luminescence equipment on a metallic base and making complete luminescence perform unlike this. Thermally conductive good copper, aluminum, etc. can be used as a metallic material.

[0026] On insulating layer 101' of a substrate 101, the metal thin film 102 which works as connection wiring with the exterior is formed by a predetermined pattern. This metal thin film 102 is formed with the material which commits the light from the EL luminous layer 105 as a reflective layer reflected in the direction of the anode layer 107 and the translucency protective coat 108. This metal thin film 102 gives whenever [sufficient as connection wiring with the exterior electric conduction], and has sufficient thickness to work as a reflective layer. It is formed by Au (gold), Ag (silver), Cu (copper), aluminum (aluminum), Cr (chromium), etc., in vacuum evaporation, thickness is about 1000Å, and, in plating, this metal thin film 102 is about 5 micrometers.

[0027] On this metal thin film 102, the cathode layer 103 which has a function as an electron injection layer is formed with the low metal of a work function. The material of a cathode layer is Ca (calcium), Li (lithium), and Mg (magnesium), is formed in about 1000Å in thickness of vacuum evaporation, and is connected to OMIKKU to the metal thin film 102. The thickness of the cathode layer 103 is 100Å or 5000Å. When it became thinner than 100Å uniform thickness was not obtained, and when it became thicker than 5000Å, process time amount was taken too much and it turned out that it is useless in cost.

[0028] The surface of the cathode layer 103 bottom is protected by the metal thin film 102 which was excellent in respect of the resistance to environment, and [and the surface of the cathode layer 103 upside] Since it is protected by each class 104 described below, 105, 106, 107, and 108, a low material (calcium ($\psi = 2.9\text{eV}$), a lithium ($\psi = 2.93\text{eV}$), and magnesium ($\psi = 3.66\text{eV}$)) of a work function can be used alone. In order to improve functional stability as mentioned above conventionally compared with this, when forming the electronic pouring cathode layer 205, 305, and 406, it is common to add and carry out vapor codeposition of the metal stabilized chemically [Ag etc.] to the material of a low work function. In this case, when two or more deposition sources are needed, control of the amount of vapor codeposition is needed, and the fault that a membrane formation process becomes complicated is produced.

[0029] Subsequently, the organic thin film 104 excellent in electronic transportability which works as an electronic transporting bed is formed on the cathode layer 103. Next, the organic thin film 105 which works as an EL luminous layer which was excellent in the transportability over a hole and an electron is formed on the organic thin film 104. As a material of the electronic transporting bed 104, a 100Å or 1000Å-thick triazole derivative, 100Å, or 1000Å-thick OKISA diazole derivative can be used. As a material of the EL luminous layer 105, a 100Å or 1000Å-thick EUROPIUM complex can be used.

[0030] Moreover, tris (8-hydroxy KINORINO) aluminum (tris-(8-hydroxy-quinolino) aluminum) (referred to as Alq) can be used as an organic thin film 104. Since tris (8-hydroxy KINORINO) aluminum has the function of both an electronic transporting bed and EL luminous layer, when using this material, making it into the electronic transporting bed 104, the EL luminous layer 105 does not need to be used for it.

[0031] The tris (8-hydroxy KINORINO) aluminum (tris-(8-hydroxy-quinolino) aluminum) thin film 504 was formed to about 500Å of thickness by the vacuum deposition method. The thickness of this Alq thin film 104 is 100Å or 1000Å. Thickness When thinner than 100Å, sufficient function was not obtained, but when it became thicker than 1000Å, it understood that applied voltage becomes less practical [become several 10v and]. In this example, the thickness of a thin film 104 is about 500Å.

[0032] Next, the hole transporting bed 106 excellent in hole transportability is formed. [the material of this hole transporting bed 106] N, an N'-diphenyl N and N'-screw (3-methyl phenyl) They are the -biphenyl 4 and -1 and 1'4'-diamine (-biphenyl 1-4, N, N'-diphenyl-N, N'-bis(3-methyl-phenyl)-1, and 1'4' diamine) (it is called TPD). It adheres to this material with vacuum deposition. The thickness of this TPD thin film 106 is 100Å or 1000Å. Thickness When thinner than 100Å, sufficient function was not obtained, but when it became thicker than 1000Å, it understood that applied voltage becomes less practical [become several 10v and]. In this example, the thickness of the TPD thin film 106 is about 500Å.

[0033] As mentioned above, since this serves both as an electronic transporting bed and a luminous layer in using the layer 104 of tris (8-hydroxy KINORINO) aluminum, it is not necessary to adhere a luminous layer 105 anew, therefore adheres to the hole transporting bed 106 directly on this layer 104. In using said triazole derivative or OKISA diazole derivative which works only as an electronic transporting bed 104, the EUROPIUM complex which works as a luminous layer 105 on this is adhered, and it adheres the hole transporting bed 106 of TPD on this luminous layer 105.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

[0034] next, on the organic thin film 106, it excels in hole pouring efficiency, and EL luminescence is penetrated - the anode layer 107 of the conductive polymeric material of sufficient translucency is formed. The material of this anode layer 107 is soluble poly aniline (poly aniline) (referred to as PANI), and PANI thin film 107 membrane formation can be performed with a dip coating method or a spin coat method. The thickness of a thin film 107 is 0.5 to 5 micrometers. When thinner than 0.5 micrometer, conductivity became low and uniform spreading became difficult, and it turned out that translucency will fall if thicker than 5 micrometers. In this example, the thickness of a thin film 506 is about 1 micrometer (micron). Hole pouring efficiency of poly aniline is higher than ITO used conventionally, and this invention is enabled to form poly aniline with high pouring efficiency in this appearance in a DIP coat or a spin coat.

[0035] Next, in order to protect the structure of the electron injection layer 103, the electronic transporting bed 104, a luminous layer 105, the hole transporting bed 106, and the hole pouring layer 107 from an external atmosphere, the protective coat 108 of sealing translucency is formed in the outside surface of this structure. This protective coat 108 is formed by closing the circumference with adhesives in piles, for example in a polyethylene terephthalate film.

[0036] In order to operate this EL luminescence equipment 100, the negative terminal of a power supply 109 is connected to the electronic pouring cathode layer 103, and the plus terminal of a power supply 109 is connected to the hole pouring anode layer 107. The electrical installation to the electronic pouring cathode layer 103 and the hole pouring anode layer 107 can carry out direct contact of the conductor to these layers, and can be performed, or can be performed using anisotropy conductive rubber or electric conduction adhesives.

[0037] With EL luminescence equipment 100 of drawing 4, the Joule's heat produced by the energy which is not changed into EL luminescence radiates heat outside through the thermally conductive high metal thin film 102 and the thermally conductive high metallic base 101. This improves the luminous efficiency of EL light-emitting device remarkably. Furthermore, among the surfaces of the large upper and lower sides of the area of the electron injection layer 103 [the lower surface] It is intercepted from an external atmosphere through the metal thin film 102 and the metallic base 101, and [and the upper surface] It is intercepted from an external atmosphere through the electronic transporting bed 104, the luminous layer 105, the hole transporting bed 106, the hole pouring layer 107, and the protection layer 108, and the very thin both ends of this electron injection layer 103 are intercepted by the protection layer from an external atmosphere. Thus, since the upper surface and the underside which occupy a big area of the electron injection layer 103 are thoroughly intercepted from an external atmosphere, the electron injection layer 103 can perform operation stabilized at the long period of time, and, thereby, stabilizes operation of EL luminescence equipment. On the other hand, since the upper surface of the large area of an electron injection layer was close to an external atmosphere through the protection layer conventionally, it was easy to produce degradation of this electron injection layer, and stable EL emission operating over a long period of time was not able to be performed.

[0038] And with EL luminescence equipment 100 equipment of drawing 4, a luminescence beam of light is emitted outside through the transparent protective film 108 of translucency. It is reflected by the reflexible metal thin film 102, and the light which progresses below through the electronic transporting bed 104 and the electron injection layer 103 from a luminous layer 105 is emitted through a protective coat 108, after passing each class. Thereby, luminous efficiency is improved.

[0039] Although it was explained that the equipment 100 of drawing 4 was a single light emitting element The metal thin film 102 for connection is formed as two or more line writing direction conductors arranged in the direction parallel to the space of drawing 4. and [this line writing direction conductor is alike, respectively, it is made to align, and the electronic pouring cathode layer 103 is formed, and the hole pouring layer 107 is formed as a conductor of two or more line directions vertical to the space of drawing 4, and] A line writing direction conductor is selectively driven with a line driver, and the equipment 100 of drawing 4 can be committed as a matrix form EL display by [which are done] driving a line direction conductor with a train driver, and making it emit light selectively on each intersection.

[0040] Moreover, if thickness of the metal thin film 102 for external connection is made into the thickness which can perform sufficient heat dissipation as mentioned above, other insulating materials of low thermal conductivity such as glass, a plastic sheet, and a ceramic, can be used as a substrate 101.

[0041] [the electronic pouring cathode layer which drawing 5 radiates the Joule's heat efficiently, cancels degradation of EL luminescence, and is moreover easy to be influenced by an external atmosphere] It arranges a the most distant place from an external atmosphere, and is shown, other examples 500, i.e., EL luminescence equipment, of (Electroluminescence EL) luminescence equipment of this invention which continues and makes a long period of time stabilize the function of an electron injection layer.

[0042] On the alkali-free-glass substrate 501, the Ag thin film 502 is formed as connection wiring with the exterior. As a metaled class, the material which has high conductivity other than Ag, such as Au (gold), Cu

THIS PAGE BLANK (USPTO)

(copper), and aluminum, is usable. The membrane formation of this Ag thin film 502 can use all of the dry type forming-membranes methods, such as the wet forming-membranes methods, such as plating, or vacuum evaporation, and [thickness] It is the thickness which attains whenever [sufficient as external connection wiring electric conduction], and attains sufficient thermal conductivity to show metallic luster sufficient as a light reflex coat, and radiate the Joule's heat further. The thickness of this metal thin film is about 5 micrometers.

[0043] On the Ag thin film 502, Ca (calcium) is laminated by a vacuum deposition method, and the cathode layer 503 which is an electron injection layer is formed. As a material of a cathode layer, Li (lithium) or Mg (magnesium) other than calcium can be used. These are connected to OMIKU to Ag thin film. The thickness of the cathode layer 503 is 100A or 5000A. When it became thinner than 100A, uniform thickness was not obtained, and when it became thicker than 5000A, process time amount was taken too much and it turned out that it is useless in cost. In the case of the example of drawing 5, the thickness of the cathode layer 503 is about 2000A.

[0044] The cathode layer 103 can be formed in the pattern of seven segments of the form of the character of the "day" which uses a shadow mask etc. and is generally used, or can be formed in the lattice pattern of the above-mentioned direction in every direction.

[0045] On the cathode layer 503, the tris (8-hydroxy KINORINO) aluminum (tris-(8-hydroxy-quinolino) aluminum) thin film 504 is formed by a vacuum deposition method at about 500A of thickness. The thickness of this Alq thin film 504 is 100A or 1000A. Thickness When thinner than 100A, sufficient function was not obtained, but when it became thicker than 1000A, it understood that applied voltage becomes less practical [become several 10v and]. In this example, the thickness of a thin film 504 is about 500A. This Alq thin film 504 has the function which served both as the electronic transporting bed and EL luminous layer.

[0046] On the Alq thin film 504, as a hole transporting bed N, an N'-diphenyl N and N'-screw (3-methyl phenyl) [the -biphenyl 4 and the -1 and 1'4'-diamine (-biphenyl 1-4, N, N'-diphenyl-N, N'-bis(3-methyl-phenyl)-1, and 1'4'-diamine) thin film 505] Membranes are formed to about 500A of thickness by a vacuum deposition method. The thickness of this TPD thin film 505 is 100A or 1000A. Thickness When thinner than 100A, sufficient function was not obtained, but when it became thicker than 1000A, it understood that applied voltage becomes less practical [become several 10v and]. In this example, the thickness of the TPD thin film 505 is about 500A.

[0047] On the TPD thin film 505, soluble poly aniline (poly aniline) (referred to as PANI) is laminated, and the anode layer 506 which is a hole pouring layer is formed. Membrane formation of the PANI thin film 506 can be performed with a dip coating method or a spin coat method. The thickness of a thin film 506 is 0.5 to 5 micrometers. When thinner than 0.5 micrometer, conductivity became low and uniform spreading became difficult, and it turned out that it will become a cost overrun if thicker than 5 micrometers. In this example, the thickness of a thin film 506 is about 1 micrometer.

[0048] Next, in order to seal the structure of the electron injection layer 503, an electronic transporting bed-cum-the luminous layer 504, the hole transporting bed 505, and the hole pouring layer 506 from an external atmosphere, the protective coat 508 of translucency is formed in the outside surface of this structure. A protective coat 508 is the polyethylene terephthalate film of translucency, and is formed by closing the circumference with adhesives. And light passes this protective coat 508 and is emitted outside.

[0049] The negative terminal of DC power supply 507 is connected to the cathode layer 503 through the Ag thin film 502 which is external connection wiring, and the terminal of plus connects with the anode layer 506, and by this EL luminescence will be generated if the direct current voltage of severalV-about tenV is impressed between the cathode layer 503 and the anode layer 506.

[0050] With EL luminescence equipment 500 of drawing 5, the Joule's heat which the energy which is not changed into EL luminescence produces radiates heat outside through thermally conductive Ag metal thin film 502 which mainly works as heat sink-cum-external drawer wiring. This improves the luminous efficiency of EL light-emitting device remarkably. Furthermore, among the surfaces of the large upper and lower sides of the area of the electron injection layer 503 [the lower surface] It is intercepted from an external atmosphere through the Ag thin film 502 and the glass substrate 501, and [and the upper surface] It is intercepted from an external atmosphere through an electronic transporting bed-cum-the luminous layer 504, the hole transporting bed 505, the hole pouring layer 506, and the protection layer 508, and only the very thin both ends of this electron injection layer 503 are intercepted by the protection layer 508 from an external atmosphere. Thus, since the upper surface and the underside which occupy a big area of the electron injection layer 503 are thoroughly intercepted from an external atmosphere, the electron injection layer 503 can perform operation stabilized at the long period of time, and, thereby, stabilizes operation of EL luminescence equipment.

[0051] Moreover, although it was explained that the equipment 500 of drawing 5 was a single light emitting element [the metal thin film 502 for connection is formed as two or more line writing direction conductors arranged in the direction parallel to the space of drawing 5 R> 5, and the hole pouring layer 506 is formed as a conductor of two or more line directions vertical to the space of drawing 5, and] A line writing direction

THIS PAGE BLANK (USPTO)

conductor is selectively driven with a line driver, and the equipment 500 of drawing 5 R> 5 can be committed as a matrix form EL display by driving a line direction conductor with a train driver.

[0052] Although the equipment 500 of drawing 5 formed the substrate 501 with the glass used conventionally supposing matrix form EL display, material other than glass can be used for it as a material of this substrate. For example, flexible (flexibility) material like polyimide is used as a substrate, and Au, Cu, or aluminum which thermal conductivity is high, and conductivity is high, and reflects light in the surface of this polyimide is adhered in the shape of a layer, and each class of drawing 5 can be formed on this. Thereby, EL luminescence display of the shape of a curved surface where operation between long-term activities was stabilized is realizable.

[0053]

[Effect of the Invention] This invention produces the following effects.

[0054] (1) The material and the configuration of a substrate can choose free. For example, the metal plate which has a curved surface, or an insulating material like flexible polyimide is also usable as a substrate.

[0055] (2) If a material excellent in thermal conductivity is used for a substrate, the Joule's heat generated at the time of EL device actuation will radiate heat efficiently, and degradation of EL luminescence will be improved.

[0056] (3) since both sides of surface area with a big cathode layer are thoroughly intercepted from an external atmosphere by above-mentioned each class and the external drawer wiring layer, or the substrate Environmental capability-proof is excellent, and since the electron injection layer is arranged by this at the outermost part, emission operating can solve the trouble of the conventional EL light-emitting device used as instability.

[0057] (4) A very low material of a work function can be freely chosen as a material of a cathode layer. As a result, improvement in EL luminous efficiency is realized.

[0058] (5) Since this cathode was arranged conventionally at the outermost part of equipment, in order to make effect of an external atmosphere hard to be influenced, vapor codeposition of the corrosion resistance high metals, such as Ag, needed to be carried out to formation of the cathode layer which is an electron injection layer, but such need can be eliminated in this invention. Thereby, a manufacture process can be simplified.

[0059] (6) Apart from an electron injection layer, since the metallic wiring layer for external connection is prepared, the membrane formation method of this metallic wiring layer can be chosen freely. For example, the method of adhering layers, such as plating or the metallic foil sticking-by pressure method, to homogeneity can be used, and equalization of the luminescence intensity distribution within a field demanded with EL luminescence equipment which has a big luminescent surface can be realized easily.

[0060] (7) Each class of EL luminescence equipment can be formed with a flexible material. For example, use a polymer film as a substrate and rolling copper is used as a metal thin film for external connection wiring. If calcium is used as a cathode layer, an organic thin film is used as a carrier transporting bed or a luminous layer and a conductive polymer is used as an anode layer, EL luminescence equipment excellent in flexibility is realizable.

[0061] (8) Since a spin coat or a dip coating method can be used as a process which adheres the conductive polymer which constitutes an anode layer, compared with the formation process of ITO currently conventionally used with the equipment of the mold, a process becomes easy.

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1] It is drawing showing EL luminescence equipment of the conventional SH-A mold.

[Drawing 2] It is drawing showing EL luminescence equipment of the conventional SH-B mold.

[Drawing 3] It is drawing showing EL luminescence equipment of the conventional DH mold.

[Drawing 4] It is drawing showing one example of EL luminescence equipment according to this invention.

[Drawing 5] It is drawing showing other examples of EL luminescence equipment according to this invention.

[Explanations of letters or numerals]

101, 501 ... Substrate

101' Insulating layer

102, 502 ... Metal thin film

103, 503 ... Cathode layer

104, 504 ... Electronic transporting bed

105 and a luminous layer

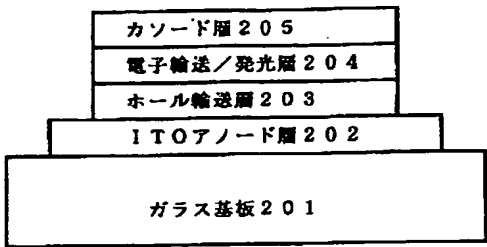
106, 505 ... Hole transporting bed

107, 506 ... Anode layer

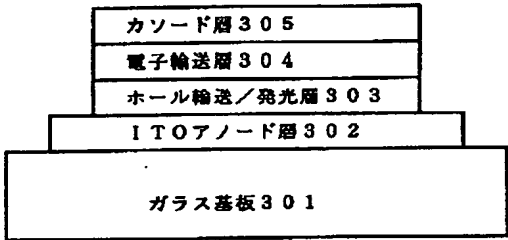
108, 508 ... Protection layer

THIS PAGE BLANK (USPTO)

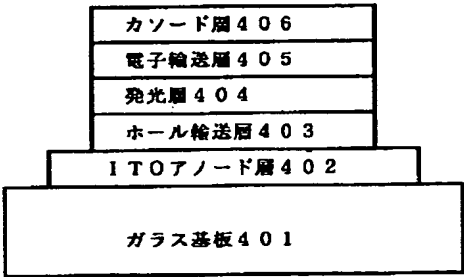
[Drawing 1]
SH-A型EL発光装置



[Drawing 2]
SH-B型EL発光装置



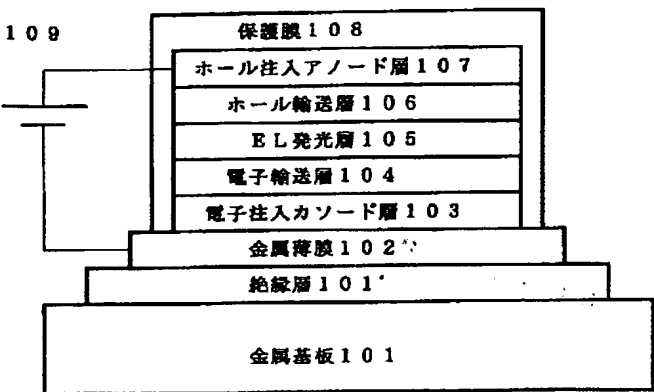
[Drawing 3]
DH型EL発光装置



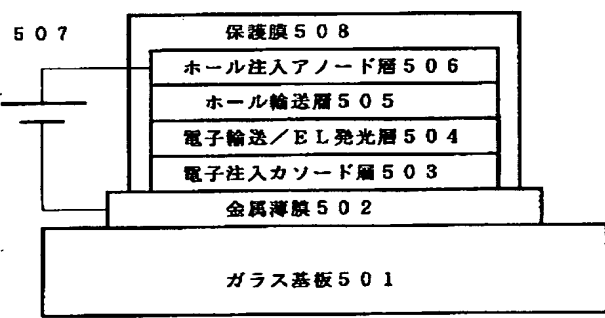
[Drawing 4]

THIS PAGE BLANK (USPTO)

EL 発光装置 100



[Drawing 5]
EL 発光装置 500



[Translation done.]

THIS PAGE BLANK (USPTO)

EUROPEAN PATENT OFFICE

Patent Abstracts of Japan

PUBLICATION NUMBER : 08124679
PUBLICATION DATE : 17-05-96

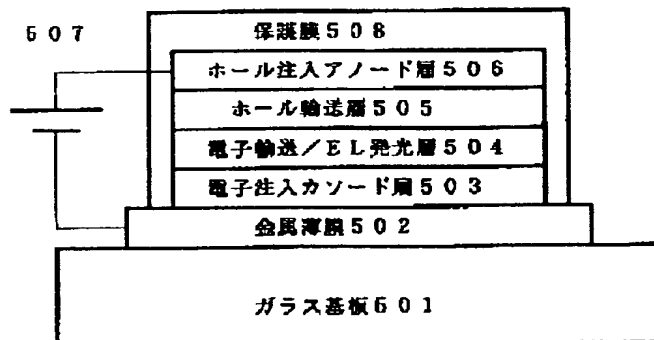
APPLICATION DATE : 25-10-94
APPLICATION NUMBER : 06260391

APPLICANT : AIMESU:KK;

INVENTOR : KUWABARA AKIO;

INT.CL. : H05B 33/26 H05B 33/04

TITLE : ELECTROLUMINESCENT DEVICE



ABSTRACT : PURPOSE: To provide an electroluminescent device excellent in environment resisting characteristic in which the deterioration of emission due to Joule's heat is improved.

CONSTITUTION: An electron injecting cathode layer 503 is formed adjacent to a metal thin film 502 formed on a glass substrate 501, an electroluminescent emitting layer 504 and a hole injecting anode layer 506 are formed on the electron injecting cathode layer, and the outside surface of the laminated body consisting of the electron injecting cathode layer, the electroluminescent emitting layer and the hole injecting anode layer is sealed by a light transmitting protective film 508. The substrate consists of a metal base or flexible organic material base having an insulating layer on the surface or glass base. The metal thin film consists of a conductive metal reflecting light. The material of the electron injecting cathode layer consists of one material selected from the group consisting of calcium, lithium and magnesium. The thickness of the material is 100 \AA to 500 \AA . The material of the light emitting layer consists of tris-(8- hydroxyquinolino) aluminium.

COPYRIGHT: (C)1996,JPO

THIS PAGE BLANK (USPTO)

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平8-124679

(43) 公開日 平成8年(1996)5月17日

(51) Int.Cl.⁶

識別記号

庁内整理番号

F 1

技術表示箇所

H 0 5 B 33/26

33/04

(21) 出願番号

特願平6-260391

(22) 出願日

平成6年(1994)10月25日

審査請求 未請求 請求項の数10 O L (全 9 頁)

(71) 出願人 592073101

日本アイ・ビー・エム株式会社
東京都港区六本木3丁目2番12号

(71) 出願人 593191350

株式会社アイメス
神奈川県藤沢市桐原町3番地

(72) 発明者 武田 和也

神奈川県藤沢市桐原町1番地 日本アイ・
ビー・エム株式会社藤沢事業所内

(72) 発明者 松本 敏男

神奈川県藤沢市桐原町1番地 日本アイ・
ビー・エム株式会社藤沢事業所内

(74) 代理人 弁理士 頓宮 孝一 (外1名)

最終頁に続く

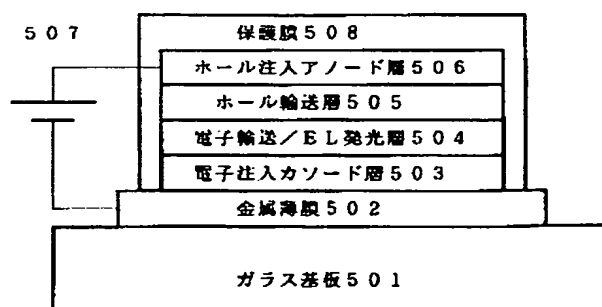
(54) 【発明の名称】 エレクトロ・ルミネッセンス装置

(57) 【要約】 (修正有)

【目的】 ジュール熱による発光の劣化を改善し、耐環境特性が優れたエレクトロ・ルミネッセンス装置を提供。

【構成】 ガラス基板501上に形成された金属薄膜502に接して電子注入カソード層503が形成され、電子注入カソード層上にエレクトロルミネッセンス発光層504及びホール注入アノード層506が形成され、上記電子注入カソード層、エレクトロ・ルミネッセンス発光層及びホール注入アノード層の積層体の外側表面が透光性の保護膜508により封止されている。基板は絶縁層を表面に有する金属基板、可撓性有機材料の基板、又はガラス基板・金属薄膜は光を反射させる導電性金属。電子注入カソード層の材料はカルシウム、リチウム及びマグネシウムからな群から選択の1つの材料。材料の厚さは100Å乃至500Å、発光層の材料はトリプス(8-ヒドロキシキノリン) アルミニウム。

E L 発光装置 500



1

【特許請求の範囲】

【請求項1】 少なくとも電子注入カソード層、エレクトロ・ルミネッセンス発光層及びホール注入アノード層を有するエレクトロ・ルミネッセンス装置において、基板上に形成された金属薄膜に接して形成された電子注入カソード層と、

該電子注入カソード層の上に形成されたエレクトロルミネッセンス発光層及びホール注入アノード層と、上記電子注入カソード層、上記エレクトロ・ルミネッセンス発光層及び上記ホール注入アノード層の積層体の外側表面を封止する透光性の保護膜とを有するエレクトロ・ルミネッセンス装置。

【請求項2】 上記基板は、絶縁層を表面に有する金属基板、可撓性有機材料の基板、又はガラス基板であることを特徴とする請求項1記載のエレクトロ・ルミネッセンス装置。

【請求項3】 上記金属薄膜は、光を反射させる導電性金属であることを特徴とする請求項1又は2記載のエレクトロ・ルミネッセンス装置。

【請求項4】 上記電子注入カソード層の材料は、カルシウム、リチウム及びマグネシウムからなる群から選択された1つの材料であることを特徴とする請求項1、2又は3記載のエレクトロ・ルミネッセンス装置。

【請求項5】 上記電子注入カソード層の材料の厚さは、100Å乃至5000Åであることを特徴とする請求項4記載のエレクトロ・ルミネッセンス装置。

【請求項6】 上記発光層の材料は、トリス-(8-ヒドロキシキノリン)アルミニウムであることを特徴とする請求項1、2、3又は4記載のエレクトロ・ルミネッセンス装置。

【請求項7】 上記発光層の材料の厚さは、100Å乃至1000Åであることを特徴とする請求項6記載のエレクトロ・ルミネッセンス装置。

【請求項8】 上記エレクトロ・ルミネッセンス発光層及び上記ホール注入アノード層の間に、N、N'-ジフェニル-N、N'-ビス(3-メチルフェニル)-1、1'-ビフェニル-4、4'-ジアミンで形成されたホール輸送層を設けたことを特徴とする請求項1、2、3、4、又は6記載のエレクトロ・ルミネッセンス装置。

【請求項9】 上記ホール輸送層の厚さは、100Å乃至1000Åであることを特徴とする請求項8記載のエレクトロ・ルミネッセンス装置。

【請求項10】 上記ホール注入アノード層の材料は、ポリアニリンであることを特徴とする請求項1、2、3、4、6、又は8記載のエレクトロ・ルミネッセンス装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、フラット・パネル表示

2

装置として使用される有機薄膜エレクトロ・ルミネッセンス(EL)装置に関する。

【0002】

【従来の技術】 1987年に発表されたEastman Kodak社のC.W.Tang等の研究報告以来(C.W.Tang and S.A.Vanslyke, "Organic Electroluminescent Diodes", Appl. Phys. Lett., Vol.51,12, pp.913-915, Sept. 1987),有機薄膜ELデバイスの研究及び開発は、活発に行われている。それらの有機薄膜ELデバイスの構造は、"光電相互変換機能をもつ有機薄膜の最近の発達" 筒井 哲夫、安達 千波矢、斉藤省吾、応用物理、第59巻、第12号、第1580-1592頁の論文で、single hetero-A型(SH-A)、single hetero-B型(SH-B)、およびdouble hetero型(DH)の3種類に大別され、図1、図2及び図3に示すような構造を有する。

【0003】 図1に示すSH-A型では、ガラス基板201の上に、ホール注入層となるアノードとして透明性のIndium Tin Oxide(ITO)層202、ホール輸送層203、発光層となる電子輸送層204、主にMgAg共蒸着合金で作られる電子注入層となるカソード205が積層構成される。

【0004】 図2に示すSH-B型では、ガラス基板301の上に、ホール注入層となるアノードとしてITO層302、発光層となるホール輸送層302、電子輸送層304、主にMgAg共蒸着合金で作られる電子注入層となるカソードが積層構成される。

【0005】 図3に示すDH型では、ガラス基板401の上に、ホール注入層となるアノードとしてITO層402、ホール輸送層403、両性輸送性を有する材料で作られた発光層404、電子輸送層405、主にMgAg共蒸着合金で作られる電子注入層となるカソード406が順次積層構成される。

【0006】 図1乃至3に示した構造を保護する方法の一つについて説明すると、GeO(酸化ゲルマニウム)又はLiF(フッ化リチウム)の蒸着膜でパッシベーションした後に、更に紫外線接着剤を使用してガラスを付ける方法がある。カソード層及びアノード層に対する電気的接続は、異方性導電性ゴム若しくは導電性接着剤を使用して行うことが出来、又はコネクタ若しくはクリップ等を直接接触させることもできる。

【0007】 上記3種類の構造とも、すべて、発光のメカニズムが電場印加による電子とホールの二重注入とその再結合であるため、この種のデバイスはキャリア注入型と呼ばれている。高効率にEL発光をさせるためには、キャリア注入効率の高い材料が有利であることが知られている。すなわち、ホール注入層となるアノード層としては、ホール輸送層へホールを効率良く注入させるために仕事関数の高い材料が良く、一方、電子注入層となるカソード層としては電子輸送層へ電子を効率良く注入させるために仕事関数の低い材料が適するとされてい

る。

【0008】E.L.デバイス用の層は、少なくともアノード層若しくはカソード層の一方が透明でなければ、光を外部に放射することができないため、透光性を有するITOが広く採用されている。ITOの仕事関数は4.1 eVであるとの文献報告があり(G. Gustafsson, Y. Cao, G. M. Treacy, F. Klavetter, N. Colaneri, and A. J. Heeger, "Flexible Light-Emitting Diodes Made from Soluble Conducting Polymers", Nature, Vol. 357, pp. 477-479, June, 1992)、仕事関数が高いため主にアノード層に使用される。一方、カソード層は、ITOよりも低い仕事関数をもつ材料であることが必要で、なるべく値の低いものが望まれる。

【0009】

【発明が解決しようとする課題】従来型の有機薄膜E.L.デバイスの問題点を列挙すると次の通りである。

【0010】(1)従来型の有機薄膜E.L.デバイスでは、電子注入カソード層205、305、406がE.L.デバイスの最外部にある構造となっている。前述のように、電子注入カソード層205、305、406は、電子注入効率を上げるために仕事関数の低い材料、言い換えれば、化学的に活性で酸化し易い材料で作られる。したがって、これを最外部に配置するのは、E.L.デバイス自体の使用環境下での機能安定性を考えると好ましいものではない。

【0011】機能安定性を改良するために、従来型の有機薄膜E.L.デバイスでは電子注入カソード層205、305、406を成膜する際、Ag等の化学的に安定した金属を低仕事関数の材料に加えて共蒸着させることが一般的である。この場合、複数の蒸着源が必要になる上、共蒸着量の制御が必要となり、成膜プロセスが複雑になるざるを得ない。

【0012】(2)有機薄膜E.L.デバイスは、キャリア注入型の発光であるため、E.L.発光に変換されない電気エネルギーはジュール熱に変換される。このジュール熱のため、デバイスの温度が上昇して、デバイスを構成する有機薄膜材料のガラス転移点を越えると急速に発光が劣化する。デバイスの長寿命化のためには、ジュール熱の発生を減らすことが基本的解決策であるが、E.L.発光効率を100%にすること、すなわちジュール熱の発生を零にすることは、現実には不可能である。したがって、発生したジュール熱を効率良く外部へ発散させることが二次的対策として重要である。従来型の有機薄膜E.L.デバイスの構造では、放熱経路として主に考えられるのは、発熱源からガラス基板201、301若しくは401への熱伝導と、ガラス基板201、301、若しくは401から使用環境の空気中への熱伝達である。ところが、常温でのガラスの熱伝導率は約1 W/m/Kであり、金属材料に比べて著しく劣る。これは、代表的な金属材料であるアルミニウム($k=237 \text{ W/m/K}$)、

Cu($k=402 \text{ W/m/K}$)、Ag($k=427 \text{ W/m/K}$)と比較すると、一桁以上も低い値である。このことは、仮に金属と同等の熱伝導率を有するような基板が使用できれば、E.L.発光の劣化を改善できることを示す。しかしながら、従来型の有機薄膜E.L.デバイスでは、その構造上基板は透光性でなければならないために、金属のような高熱伝導性の材料を使用することは不可能である。

【0013】(3)基板201、301及び401の材料としては、光を外部に放出するために、透明なガラス若しくは透明なポリエチレンテレフタレート等のポリマー・フィルムに限定されている。

【0014】(4)大きな発光面を持つE.L.デバイスでは、E.L.発光強度の面内分布が均一であることが望まれる。面内発光強度分布を均一にするための条件は、層を十分な膜厚値で、かつ均一に成膜することである。従来型の有機薄膜E.L.デバイスでは、電子注入層205、305、405を成膜する方法として、真空蒸着法が一般に採用されている。しかしながら、真空蒸着法で厚い膜を付着しようとする場合、プロセス時間が長くなる。又、大きな発光面に対して均一な膜厚に付着するのは困難である。メッキなどの湿式成膜法は、高厚膜化と高均一化の両方の点で有利であるが、直下に有機薄膜が存在している従来型のE.L.デバイスでは採用できない。

【0015】

【課題を解決するための手段】本発明は、少なくとも電子注入カソード層、エレクトロ・ルミネッセンス発光層及びホール注入アノード層を有するエレクトロ・ルミネッセンス装置に関し、そしてこの装置において、基板上に形成された金属薄膜に接して電子注入カソード層が形成され、該電子注入カソード層の上にエレクトロルミネッセンス発光層及びホール注入アノード層が形成され、上記電子注入カソード層、上記エレクトロ・ルミネッセンス発光層及び上記ホール注入アノード層の積層体の外側表面が、透光性の保護膜により封止されている。

【0016】上記基板は、絶縁層を表面に有する金属基板、可撓性有機材料の基板、又はガラス基板である。

【0017】上記金属薄膜は、光を反射させる導電性金属である。

【0018】上記電子注入カソード層の材料は、カルシウム、リチウム及びマグネシウムからなる群から選択された1つの材料である。

【0019】上記電子注入カソード層の材料の厚さは、100 Å乃至5000 Åである。上記発光層の材料は、トリスー(8-ヒドロキシーキノリン)アルミニウムである。

【0020】上記発光層の材料の厚さは、100 Å乃至1000 Åである。

【0021】上記エレクトロ・ルミネッセンス発光層及び上記ホール注入アノード層の間にはホール輸送層が設

5

けられ、該ホール輸送層の材料は、N、N'-ジフェニル-N、N'-ビス(3-メチル-フェニル)-1、1'-ビフェニル-4、4'-ジアミンである。

【0022】上記ホール輸送層の厚さは、100Å乃至1000Åである。

【0023】上記ホール注入アノード層の材料は、ポリアニリンである。

【0024】

【実施例】図4は、ジュール熱を効率的に放散してEL発光の劣化を解消し、しかも外部雰囲気の影響を受け易い電子注入層をデバイスのうち、外部雰囲気から一番遠い内部に配置して電子注入層の機能を長期に亘って安定化させる本発明のエレクトロルミネッセンス(EL)発光装置100の実施例を示す。

【0025】図4のEL発光装置100において、基板101は、非透光性の熱伝導性が高い材料で形成される。そしてこの高熱伝導性金属基板の表面は、厚さが約1000Åの酸化膜のような電気的絶縁層101'で覆われている。図1乃至図3の従来のEL発光装置では、EL発光層からの光は、ガラス基板201、301若しくは401を通過して外部に放出され、従って、これらの基板は、透光性でなければならなかったのに対して、図4及び図5の本発明のEL発光装置では、光は基板101若しくは501を介して外部に放出されるのではなく、透光性の保護膜108若しくは508を介して外部に放出され、そしてジュール熱を効率的に外部に発散させるように金属薄膜102若しくは502の材料及び厚さを選択できるので、基板101及び501の材料は、従来の装置に比較して、自由に選択されることが出来る。従って、本発明においては、基板101若しくは501は、放熱性に優れた厚い金属基板若しくは薄い可撓性の金属箔、セラミック基板、可撓性のポリイミドのような可撓性のポリマー・フィルム基板、そして従来使用されていたガラス基板等のうちの任意の基板を、このEL発光装置の用途に応じて自由に選択することが出来る。従って、EL発光装置の使用分野を著しく広げることが出来る。放熱性が金属に比較して低い基板を使用する場合には、金属薄膜102若しくは502の断面積を増大することにより放熱効果を高めることが出来る。このように本発明によると可撓性の基板をも使用することが出来るので、曲面状のEL発光装置を実現することが出来る。但し、一つの金属基板上に複数個のEL発光装置を独立して選択的に動作させるように形成する場合には、金属基板上に絶縁層を形成し、そしてこの絶縁層上に金属薄膜102若しくは502を形成することが必要である。これとは異なり、金属基板上に単一のEL発光装置を形成して、全面発光を行わせる場合には、絶縁層は不要である。金属材料として、熱伝導性の良い銅、アルミニウム等を使用できる。

【0026】基板101の絶縁層101'上には、外部

6

との接続配線として働く金属薄膜102が所定のパターンで形成される。この金属薄膜102は、EL発光層105からの光をアノード層107及び透光性保護膜108の方向に反射する反射膜として働く材料で形成される。この金属薄膜102は、外部との接続配線として十分な導電度を与え、そして、反射膜として働くに十分な厚さを有する。この金属薄膜102は、Au(金)、Ag(銀)、Cu(銅)、Al(アルミニウム)、Cr(クロム)等で形成され、そして厚さは、蒸着の場合には約1000Åであり、そしてメッキの場合には約5μmである。

【0027】この金属薄膜102の上に、電子注入層としての機能を有するカソード層103を、仕事関数の低い金属で形成する。カソード層の材料は、Ca(カルシウム)、Li(リチウム)、Mg(マグネシウム)であり、蒸着により厚さ約1000Åに形成されて金属薄膜102に対してオーミックに接続する。カソード層103の厚さは、100Å乃至5000Åである。100Åよりも薄くなると均一な膜厚が得られず、そして5000Åより厚くなるとプロセス時間がかかりすぎてコスト的に無駄であることが判った。

【0028】カソード層103の下側の表面は、耐環境性の点で優れた金属薄膜102により保護され、そしてカソード層103の上側の表面は、以下に述べる各層104、105、106、107及び108により保護されているので、仕事関数の低い材料(カルシウム(φ=2.9eV)、リチウム(φ=2.93eV)、そしてマグネシウム(φ=3.66eV))を、単体で使うことが出来る。これに比べて、従来は前述のように、機能安定性を改良するために、電子注入カソード層205、305、406を成膜する際、Ag等の化学的に安定した金属を低仕事関数の材料に加えて共蒸着させることが一般的である。この場合、複数の蒸着源が必要になる上、共蒸着量の制御が必要となり、成膜プロセスが複雑になるという欠点を生じる。

【0029】次いで、カソード層103の上に、電子輸送層として働く、電子輸送性に優れた有機薄膜104を形成する。次に、有機薄膜104の上に、ホール及び電子に対する輸送性の優れたEL発光層として働く有機薄膜105を形成する。電子輸送層104の材料として、100Å乃至1000Åの厚さのトリアゾール誘導体若しくは100Å乃至1000Åの厚さのオキサジアゾール誘導体を使用することが出来る。EL発光層105の材料として、100Å乃至1000Åの厚さのヨウロビウム錯体を使用することが出来る。

【0030】又、有機薄膜104として、トリス-(8-ヒドロキシキノリン)アルミニウム(tris-(8-hydroxy-quinolino)aluminum)(Alqと呼ばれる)を使用することが出来る。トリス-(8-ヒドロキシキノリン)アルミニウムは、電子輸送層及びEL発光層の両

7

方の機能を有するので、この材料を電子輸送層104として、使用する場合には、EL発光層105を使用する必要はない。

【0031】真空蒸着法でトリスー(8-ヒドロキシキノリノ)アルミニウム(tris-(8-hydroxy-quinolino) aluminum) 薄膜504を膜厚約500Åに成膜した。このAlq薄膜104の厚さは、100Å乃至1000Åである。厚さが100Åよりも薄いと、十分な機能が得られず、1000Åよりも厚くなると、印加電圧が数10ボルトとなり実用的でなくなることが判った。この実施例では、薄膜104の厚さは、約500Åである。

【0032】次に、ホール輸送性に優れたホール輸送層106を形成する。このホール輸送層106の材料は、N, N'-ジフェニル-N, N'-ビス(3-メチルフェニル)-1, 1'-ビフェニル-4, 4'-ジアミン(N, N'-diphenyl-N, N'-bis(3-methyl-phenyl)-1, 1'-biphenyl-4, 4'diamine)(TPDという)である。この材料は、蒸着法により付着される。このTPD薄膜106の厚さは、100Å乃至1000Åである。厚さが100Åよりも薄いと、十分な機能が得られず、1000Åよりも厚くなると、印加電圧が数10ボルトとなり実用的でなくなることが判った。この実施例では、TPD薄膜106の厚さは、約500Åである。

【0033】上述のように、トリスー(8-ヒドロキシキノリノ)アルミニウムの層104を使用する場合には、これが電子輸送層及び発光層を兼ねるので、改めて発光層105を付着する必要がなく、従って、この層104の上にホール輸送層106が直接付着される。電子輸送層104としてのみ働く前記トリアゾール誘導体若しくはオキサジアゾール誘導体を使用する場合には、これの上に発光層105として働くヨウロピウム錯体を付着し、そしてこの発光層105の上に、TPDのホール輸送層106を付着する。

【0034】次に、有機薄膜106の上に、ホール注入効率に優れ、且つEL発光を透過する十分な透光性の導電性ポリマー材料のアノード層107を形成する。このアノード層107の材料は、可溶性ポリアニリン(poly aniline)(PANIと呼ぶ)であり、PANI薄膜107成膜は、ディップ・コート法若しくはスピン・コート法により行うことが出来る。薄膜107の膜厚は、0.5乃至5μmである。0.5μmよりも薄いと導電性が低くなって均一な塗布が困難となり、そして5μmよりも厚いと透光性が低下することが判った。この実施例では、薄膜506の厚さは、約1μm(ミクロン)である。ポリアニリンは、従来使用されてきたITOよりもホール注入効率が高く、そして本発明は、この様に注入効率の高いポリアニリンをディップ・コート若しくはスピン・コートで形成することを可能とする。

【0035】次に、電子注入層103、電子輸送層10

8

4、発光層105、ホール輸送層106及びホール注入層107の構造体を外部雰囲気から保護するために、密封性の透光性の保護膜108を、この構造体の外側表面に形成する。この保護膜108は、例えばポリエチレンテレフタレート・フィルムを重ねて、周囲を接着剤により封止することにより形成される。

【0036】このEL発光装置100を動作させるために、電子注入カソード層103には電源109のマイナス端子が接続され、そしてホール注入アノード層107には、電源109のプラス端子が接続される。電子注入カソード層103及びホール注入アノード層107に対する電氣的接続は、これらの層に導体を直接接触させて行うことが出来、又は異方性導電性ゴム若しくは導電接着剤を使用して行うことが出来る。

【0037】図4のEL発光装置100では、EL発光に変換されないエネルギーによって生じるジュール熱は、熱伝導性の高い金属薄膜102及び金属基板101を介して外部に放熱される。これにより、EL発光デバイスの発光効率を著しく改善する。更に、電子注入層103の面積の広い上下の表面のうち下側の表面は、金属薄膜102及び金属基板101を介して外部雰囲気から遮断されており、そして上側の表面は、電子輸送層104、発光層105、ホール輸送層106、ホール注入層107及び保護層108を介して外部雰囲気から遮断されており、そしてこの電子注入層103の非常に薄い両端部は、保護層により外部雰囲気から遮断されている。この様に電子注入層103の大きな面積を占める上面及び下面が完全に外部雰囲気から遮断されるために、電子注入層103は、長期に亘り安定した動作を行うことが出来、これによりEL発光装置の動作を安定化させる。これに対して、従来は、電子注入層の大部分の上面が保護層を介して外部雰囲気に近接していたために、この電子注入層の劣化が生じ易く、長期に亘る安定したEL発光動作を行うことが出来なかった。

【0038】そして図4のEL発光装置100装置では、発光光線は、透光性の透明保護膜108を介して外部に放出される。発光層105から電子輸送層104及び電子注入層103を介して下方に進む光は、反射性の金属薄膜102により反射されて、各層を通過した後に保護膜108を介して放出される。これにより、発光効率が改善される。

【0039】図4の装置100は、単一の発光素子であるとして説明したが、接続用の金属薄膜102を図4の紙面に平行な方向に配列された複数本の行方向導体として形成し、そしてこの行方向導体のそれぞれに整列させて電子注入カソード層103を形成し、そしてホール注入層107を図4の紙面に垂直な複数本の列方向の導体として形成し、そして、行方向導体を行ドライブにより選択的に駆動し、そして列方向導体を列ドライブにより駆動して各交点で選択的に発光させるすることにより、

図4の装置100は、マトリクス状のEL表示装置として働くことが出来る。

【0040】又、前述のように、外部接続用の金属薄膜102の厚さを、十分な放熱を行えるような厚さにするならば、基板101として、ガラス、プラスチック・シート、セラミック等の他の低熱伝導性の絶縁材料を使用することが出来る。

【0041】図5は、ジュール熱を効率的に放散してEL発光の劣化を解消し、しかも外部雰囲気の影響を受け易い電子注入カソード層を、外部雰囲気から一番遠い場所に配置して電子注入層の機能を長期に亘って安定化させる本発明のエレクトロルミネッセンス(EL)発光装置の他の実施例即ちEL発光装置500を示す。

【0042】無アルカリ・ガラス基板501の上に、外部との接続配線としてAg薄膜502を形成する。金属の種類としては、Agのほかに、Au(金)、Cu(銅)、アルミニウムなどの高い導電率を有する材料が使用可能である。このAg薄膜502の成膜は、メッキなどの湿式成膜法、若しくは蒸着などの乾式成膜法のいずれをも使用でき、膜厚は、外部接続配線として十分な導電度を達成し、かつ、光反射皮膜として十分な金属光沢を示し、更にジュール熱の放散を行うに十分な熱伝導性を達成する厚さである。この金属薄膜の厚さは、約5μmである。

【0043】Ag薄膜502の上に、真空蒸着法によりCa(カルシウム)を積層して、電子注入層であるカソード層503を形成する。カソード層の材料として、カルシウムのほかに、Li(リチウム)若しくはMg(マグネシウム)を使用することが出来る。これらは、Ag薄膜に対してオーミックに接続する。カソード層503の厚さは、100Å乃至5000Åである。100Åよりも薄くなると均一な膜厚が得られず、そして5000Åよりも厚くなるとプロセス時間がかかりすぎてコスト的に無駄であることが判った。図5の実施例の場合には、カソード層503の厚さは約2000Åである。

【0044】カソード層103は、シャドウマスクなどを使用して、一般的に使用されている”日”の字の形の7セグメントのパターンに形成することが出来、又は、前述の縦横方向の格子パターンに形成されることが出来る。

【0045】カソード層503の上に、真空蒸着法でトリス(8-ヒドロキシキノリン)アルミニウム(tris-(8-hydroxy-quinolino) aluminum)薄膜504を膜厚約500Åに成膜する。このAlq薄膜504の厚さは、100Å乃至1000Åである。厚さが100Åよりも薄いと、十分な機能が得られず、1000Åよりも厚くなると、印加電圧が数10ボルトとなり実用的でなくなることが判った。この実施例では、薄膜504の厚さは、約500Åである。このAlq薄膜504は、電子輸送層とEL発光層を兼ねた機能を有する。

【0046】Alq薄膜504の上に、ホール輸送層として、N,N'-ジフェニル-N,N'-ヒ(3-メチルフェニル)-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミン(N,N'-diphenyl-N,N'-bis(3-methyl-phenyl)-1,1'-biphenyl-4,4'-diamine)薄膜505を、真空蒸着法により膜厚約500Åに成膜する。このTPD薄膜505の厚さは、100Å乃至1000Åである。厚さが100Åよりも薄いと、十分な機能が得られず、1000Åよりも厚くなると、印加電圧が数10ボルトとなり実用的でなくなることが判った。この実施例では、TPD薄膜505の厚さは、約500Åである。

【0047】TPD薄膜505の上に、可溶性ポリ・アニリン(poly aniline)(PANIと呼ぶ)を積層し、ホール注入層であるアノード層506を成膜する。PANI薄膜506の成膜は、ディップ・コート法若しくはスピン・コート法により行うことが出来る。薄膜506の膜厚は、0.5乃至5μmである。0.5μmよりも薄いと導電性が低くなって均一な塗布が困難となり、そして5μmよりも厚いとコスト高となることが判った。この実施例では、薄膜506の厚さは、約1μmである。

【0048】次に、電子注入層503、電子輸送層兼発光層504、ホール輸送層505及びホール注入層506の構造を外部雰囲気から密封するために、透光性の保護膜508を、この構造体の外側表面に形成する。保護膜508は、透光性のポリエチレンテレフタレート・フィルムであり、周囲を接着剤により封止することにより形成される。そして光はこの保護膜508を通過して外部に放出される。

【0049】直流電源507のマイナス端子が外部接続配線であるAg薄膜502を介してカソード層503に接続され、そしてプラスの端子がアノード層506に接続され、これにより、カソード層503及びアノード層506の間に数Vから10数Vの直流電圧を印加すると、EL発光が発生される。

【0050】図5のEL発光装置500では、EL発光に変換されないエネルギーが生じるジュール熱は、主に放熱板兼外部引き出し配線として働く熱伝導性のAg金属薄膜502を介して外部に放熱される。これにより、EL発光デバイスの発光効率を著しく改善する。更に、電子注入層503の面積の広い上下の表面のうち下側の表面は、Ag薄膜502及びガラス基板501を介して外部雰囲気から遮断されており、そして上側の表面は、電子輸送層兼発光層504、ホール輸送層505、ホール注入層506及び保護膜508を介して外部雰囲気から遮断されており、そしてこの電子注入層503の非常に薄い両端部だけが保護膜508により外部雰囲気から遮断されている。この様に電子注入層503の大きな面積を占める上面及び下面が完全に外部雰囲気から遮断されるために、電子注入層503は、長期に亘り安定した動作を行うことが出来、これによりEL発光装置の動作

を安定化させる。

【0051】又、図5の装置500は、単一の発光素子であるとして説明したが、接続用の金属薄膜502を図5の紙面に平行な方向に配列された複数本の行方向導体として形成し、そしてホール注入層506を図5の紙面に垂直な複数本の列方向の導体として形成し、そして、行方向導体を行ドライバにより選択的に駆動し、そして列方向導体を列ドライバにより駆動することにより、図5の装置500は、マトリクス状のEL表示装置として働くことが出来る。

【0052】図5の装置500は、マトリクス状のEL表示装置を想定して、基板501を従来使用されてきたガラスで形成したが、この基板の材料として、ガラス以外の材料を使用出来る。例えば、ポリイミドのようなフレキシブル（可撓性）材料を基板として使用して、このポリイミドの表面に、熱伝導性が高く、導電率が高く且つ光を反射するAu、Cu若しくはアルミニウムを膜状に付着し、そしてこの上に図5の各層を形成することが出来る。これにより、長期の使用の間動作が安定した曲面状のEL発光表示装置を実現することができる。

【0053】

【発明の効果】本発明は次のような効果を生じる。

【0054】（1）基板の材料と形状が自在に選択できる。例えば、曲面を有する金属板若しくは、可撓性のポリイミドのような絶縁材料も基板として使用可能である。

【0055】（2）基板に熱伝導性に優れた材料を使用すれば、ELデバイス駆動時に発生するジュール熱が効率良く放熱されてEL発光の劣化が改善される。

【0056】（3）カソード層の大きな表面積の両面が、上記各層及び、外部引き出し配線層若しくは基板により外部雰囲気から完全に遮断されているために、耐環境特性が優れており、そしてこれにより、最外部に電子注入層が配置されていたために、発光動作が不安定となった従来のEL発光デバイスの問題点を解決することが出来る。

【0057】（4）仕事関数の極めて低い材料をカソード層の材料として自由に選択できる。この結果、EL発光効率の向上を実現する。

【0058】（5）電子注入層であるカソード層の形成には、従来は、このカソードが装置の最外部に配置されていたために、外部雰囲気の影響を受けにくくするため

にAgなどの耐食性の高い金属を共蒸着する必要があったが、本発明ではこのような必要性を排除できる。これにより、製造プロセスを簡略化できる。

【0059】（6）電子注入層とは別に、外部接続用の金属配線層が設けられているために、この金属配線層の成膜方法を自由に選択することが出来る。例えば、メッキ法若しくは金属箔圧着法などの膜を均一に付着できる方法を使用でき、大きな発光面を有するEL発光装置で要求される面内発光強度分布の均一化が容易に実現できる。

【0060】（7）EL発光装置の各層を可撓性の材料で形成することが出来る。例えば、基板としてポリマー・フィルムを使用し、外部接続配線用の金属薄膜として圧延銅を使用し、カソード層としてカルシウムを使用し、キャリア輸送層若しくは発光層として有機薄膜を使用し、アノード層として導電性ポリマーを使用すると、可撓性に優れたEL発光装置を実現できる。

【0061】（8）アノード層を構成する導電性ポリマーを付着する工程として、スピン・コート若しくはディップ・コート法を使用できるので、従来型の装置で使用されているITOの形成工程に比べて、工程が簡単になる。

【図面の簡単な説明】

【図1】従来のSH-A型のEL発光装置を示す図である。

【図2】従来のSH-B型のEL発光装置を示す図である。

【図3】従来のDH型のEL発光装置を示す図である。

【図4】本発明に従うEL発光装置の一つの実施例を示す図である。

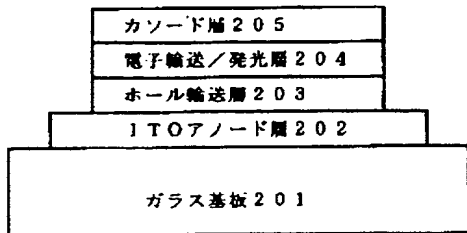
【図5】本発明に従うEL発光装置の他の実施例を示す図である。

【符号の説明】

101、501・・・基板
101'・・・絶縁層
102、502・・・金属薄膜
103、503・・・カソード層
104、504・・・電子輸送層
105、・・・発光層
106、505・・・ホール輸送層
107、506・・・アノード層
108、508・・・保護層

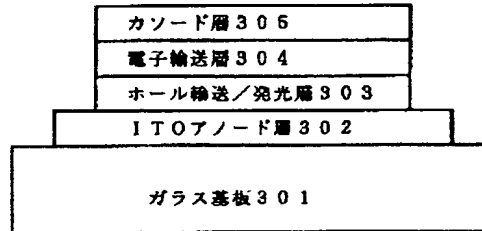
【図1】

SH-A型EL発光装置



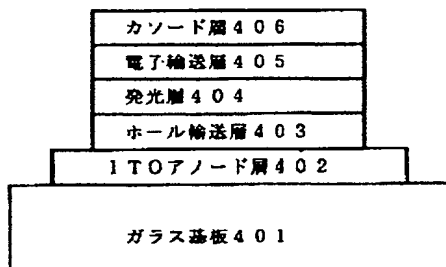
【図2】

SH-B型EL発光装置



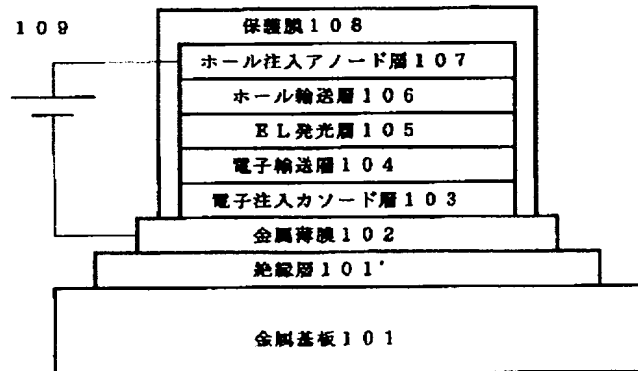
【図3】

DH型EL発光装置



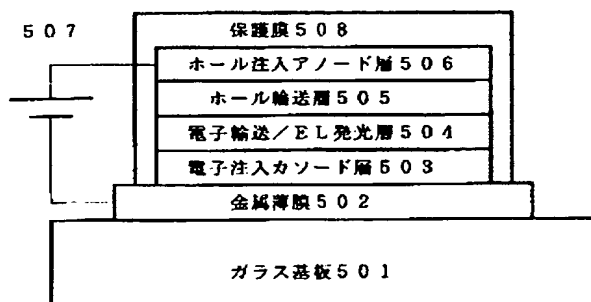
【図4】

EL発光装置100



【図5】

EL発光装置500



フロントページの続き

(72)発明者 水上 時雄
神奈川県藤沢市桐原町3番地 株式会社ア
イメス内

(72)発明者 桑原 昭夫
神奈川県藤沢市桐原町3番地 株式会社ア
イメス内

THIS PAGE BLANK (USPTO)